

Rec'd PCT/PTO 23 MAR 2005

PCT/JP03/16675

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

25.12.03

10/528794

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2003年 8月19日

出 願 番 号
Application Number: 特願2003-295274
[ST. 10/C]: [JP2003-295274]

出 願 人
Applicant(s): 本田技研工業株式会社

REC'D 19 FEB 2004

WIPO

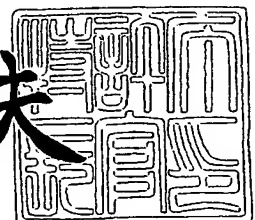
PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 2月 6日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



BEST AVAILABLE COPY

出 願 年 月 日 出 願 号 2004-3007297

【書類名】 特許願
【整理番号】 H103175101
【提出日】 平成15年 8月19日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 H01M 8/02
C25D 11/34

【発明者】
【住所又は居所】 埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホンダエンジニアリング株式会社内
【氏名】 近藤 哲也

【発明者】
【住所又は居所】 埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホンダエンジニアリング株式会社内
【氏名】 小川 義光

【発明者】
【住所又は居所】 埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホンダエンジニアリング株式会社内
【氏名】 石上 修

【特許出願人】
【識別番号】 000005326
【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】
【識別番号】 100067356
【弁理士】
【氏名又は名称】 下田 容一郎

【選任した代理人】
【識別番号】 100094020
【弁理士】
【氏名又は名称】 田宮 寛祉

【手数料の表示】
【予納台帳番号】 004466
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1
【包括委任状番号】 9723773
【包括委任状番号】 0011844

【書類名】特許請求の範囲**【請求項 1】**

ステンレス鋼製薄板に潤滑剤を塗布してガス流路及び冷却水流路をプレス成形する工程と、

洗浄用アルカリ性溶液をプレス成形した後の前記ステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に付着した前記潤滑剤を除去する工程と、

洗浄水を前記ステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に付着した前記洗浄用アルカリ性溶液を除去する工程と、

イオン交換水を前記ステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に残留する前記洗浄水を除去する工程と、

前記ステンレス鋼製薄板を不働態化处理するために不働態化处理用アルカリ性溶液を前記ステンレス鋼製薄板にスプレーする工程と、

イオン交換水を前記ステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に付着した前記不働態化处理用アルカリ性溶液を除去する工程と、

前記ステンレス鋼製薄板を加熱乾燥する工程と、
から構成したことを特徴とする燃料電池用ステンレス鋼製セパレータの製造方法。

【請求項 2】

前記不働態化处理用アルカリ性溶液は、 $\text{pH} 9 \sim 12$ で且つ $40 \sim 60^\circ\text{C}$ とした溶液であることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池用ステンレス鋼製セパレータの製造方法。

【請求項 3】

前記不働態化处理用アルカリ性溶液は、 pH 緩衝液を添加した溶液であることを特徴とする請求項 2 記載の燃料電池用ステンレス鋼製セパレータの製造方法。

【請求項 4】

前記加熱乾燥処理は、 $100 \sim 200^\circ\text{C}$ にて行うことを特徴とする請求項 1、請求項 2 又は請求項 3 記載の燃料電池用ステンレス鋼製セパレータの製造方法。

【請求項 5】

前記洗浄用アルカリ性溶液は、塩基性塩に界面活性剤を添加した溶液であることを特徴とする請求項 1 ～ 請求項 4 のいずれか 1 項記載の燃料電池用ステンレス鋼製セパレータの製造方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池用ステンレス鋼製セパレータの製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池用ステンレス鋼製セパレータの製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

固体高分子電解質型燃料電池は、各燃料電池セルを複数積層することで所望の出力を得る構造であるため、各燃料電池セルを仕切るセパレータとしては、樹脂材料に比較して積層時の加圧力に対する強度や積層後の小型化が有利な金属材料が有力視されている。特に、ステンレス鋼材は、セルの電極部分周囲の酸性雰囲気に対して高い耐食性を備える不動態皮膜を形成することから採用が検討されている。

【0003】

上記のようなステンレス鋼材の処理方法として、脱脂及び不動態化処理を行うもの（例えば、特許文献1参照）、脱脂及びエッチングを行うもの（例えば、特許文献2参照。）、脱脂及び研磨を行うもの（例えば、特許文献3参照。）、酸洗を行うもの（例えば、特許文献4参照。）が知られている。

【特許文献1】特表平10-503241号公報

【特許文献2】特開平9-291400号公報

【特許文献3】特開2000-282276公報

【特許文献4】特開2001-214286公報

【0004】

特許文献1は、ステンレス鋼板表面を洗浄し且つ不動態化するアルカリベースの処方物を提供するものであり、ステンレス鋼表面の洗浄液は、炭酸塩等のアルカリ塩を除くアルカリ成分+キレート剤+水+界面活性剤からなる。

【0005】

特許文献2は、水酸化ナトリウムと硫酸を含むpH10～12.5の水溶液を電解質として電解処理し、ステンレス冷間圧延後の表面に付着した圧延油を除去するとともにステンレス表面にできた不動態皮膜中のCr成分を低濃度化して材料のエッチング性を改善するものである。

【0006】

特許文献3は、冷間圧延を施したステンレス鋼板の表面にアルカリ性溶液を吹き付けつつブラッシングを行い、冷間圧延後に鋼板表面に存在するスマッジ（よごれ）を除去した後、研磨を行うことで、模様及びピット疵のない表面性状を有するステンレス鋼研磨品を製造するものである。

【0007】

特許文献4は、ステンレス鋼を酸性水溶液で酸洗してその表面に導電性を有する炭化物系金属介在物及び硼化物系金属介在物のうちの1種以上を露出させ、次いでpHが7以上であるアルカリ性水溶液により中和処理を行って接触電気抵抗の増大を防止し、その後さらに水洗、乾燥するものである。

酸洗は、ステンレス鋼を酸性水溶液に浸漬する、又はステンレス鋼表面に酸性水溶液をシャワーすることで行う。

【0008】

上記の特許文献1では、ステンレス鋼板をアルカリベースの溶液に浸漬し、特許文献2では、ステンレス冷間圧延材を水酸化ナトリウムと硫酸を含む水溶液に浸漬するため、例えば、処理槽から処理液をオーバーフローさせながら浸漬するオーバーフロー式浸漬法によって洗浄すれば、処理液の使用量が多くなり、また、浸漬法では洗浄が徐々に行われるため、処理時間も長くなる。更に、ステンレス鋼材に付着した油脂量が多ければ、洗浄後に油脂が残留することがあり、確実な洗浄が行えない場合がある。

【0009】

また、特許文献4では、酸とアルカリとの各溶液を使用するため、廃液の処理を別々に行う必要があり、コストが嵩む。

更に、特許文献3では、ステンレス鋼板にアルカリ性溶液を吹き付けつつブラッシングを行うため、ブラッシングの駆動力を発生させるための駆動源が必要となる。簡単な設備で処理を行うことができれば、設備に要するコストを低減できる。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明は、燃料電池用ステンレス鋼製セパレータの製造方法に関し、セパレータの材料となるステンレス鋼製薄板の洗浄に要する時間を短縮するとともに洗浄に要する処理液の使用量を低減し、廃液の処理コストを抑え、設備の簡素化を図ることを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0011】

請求項1に係る発明は、ステンレス鋼製薄板に潤滑剤を塗布してガス流路及び冷却水流路をプレス成形する工程と、洗浄用アルカリ性溶液をプレス成形した後のステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に付着した潤滑剤を除去する工程と、洗浄水をステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に付着した洗浄用アルカリ性溶液を除去する工程と、イオン交換水をステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に残留する洗浄水を除去する工程と、ステンレス鋼製薄板を不動態化処理するために不動態化処理用アルカリ性溶液をステンレス鋼製薄板にスプレーする工程と、イオン交換水をステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に付着した不動態化処理用アルカリ性溶液を除去する工程と、ステンレス鋼製薄板を加熱乾燥する工程と、から構成したことを特徴とする。

【0012】

洗浄用アルカリ性溶液をステンレス鋼製薄板にスプレーすることにより、ステンレス鋼製薄板に付着した潤滑剤を強制的に且つ迅速に除去する。

また、洗浄水及びイオン交換水による洗浄、不動態化処理用アルカリ性溶液による不動態化処理をもスプレーで行うことにより、洗浄、不動態化処理を迅速に行う。

更に、同じアルカリ性とした洗浄用溶液と不動態化処理用溶液とのそれぞれの廃液を同時に処理する。

また更に、ブラッシング等を行わないため、特別な駆動源は不要である。

【0013】

請求項2に係る発明は、不動態化処理用アルカリ性溶液を、pH 9～12で且つ40～60℃とした溶液としたことを特徴とする。

ステンレス鋼製薄板をアルカリ性溶液により不動態化処理すれば、ステンレス鋼製薄板からの金属イオンが溶出しない。また、単一の溶液でのスプレーのみで不動態化処理を行うから処理工程数が少なくなる。

【0014】

請求項3に係る発明は、不動態化処理用アルカリ性溶液を、pH緩衝液を添加した溶液としたことを特徴とする。

不動態化処理用アルカリ性溶液のスプレーによって、不動態化処理用アルカリ性溶液中に二酸化炭素が溶解するため、この二酸化炭素によって不動態化処理用アルカリ性溶液中に H^+ が増加してpHを低下させようとするが、pH緩衝液はそのpHの低下を抑える。

【0015】

請求項4に係る発明は、加熱乾燥処理を、100～200℃にて行うことを特徴とする。

ステンレス鋼製薄板を100～200℃で加熱乾燥すると、不動態化処理用アルカリ性溶液で形成した不動態皮膜がより安定する。

【0016】

請求項5に係る発明は、洗浄用アルカリ性溶液を、塩基性塩に界面活性剤を添加した溶

液としたことを特徴とする。

塩基性塩に界面活性剤を添加すれば、泡が発生し難くなる。

【発明の効果】

【0017】

請求項1に係る発明では、洗浄用アルカリ性溶液をステンレス鋼製薄板にスプレーすることによりステンレス鋼製薄板に付着した潤滑剤を除去する工程を設けたことで、スプレーによって潤滑剤除去効果を高めることができ、従来の浸漬による除去工程に比べて、除去時間を短縮することができるとともに除去に要する洗浄用アルカリ性溶液の量を減らすことができる。

【0018】

また、洗浄水及びイオン交換水による洗浄、不働態化処理をもスプレーで行うことにより、これらの洗浄及び不働態化処理に要する時間を従来の浸漬法に比べてより一層短縮することができ、また、洗浄に要する洗浄水、イオン交換水の量を減らすことができる。

【0019】

更に、洗浄用溶液と不働態化処理用溶液とを同じアルカリ性としたので、それぞれの廃液を同時に処理することができ、コストを抑えることができる。

また更に、従来のようなブラッシング等に必要な駆動源が不要であるから、設備の簡素化を図ることができ、設備に要するコストを低減することができる。

【0020】

請求項2に係る発明では、ステンレス鋼製薄板を不働態化処理用アルカリ性溶液により不働態化処理するので、ステンレス鋼製薄板からの金属イオンの溶出がなく、酸により不働態化処理するのに比べて、廃液処理に要するコストを低減することができ、また、単一の溶液でのスプレーのみで不働態化処理を行うことができ、処理工程数が少なく、より一層コスト低減を図ることができる。

【0021】

請求項3に係る発明では、不働態化処理用アルカリ性溶液のスプレーによって、不働態化処理用アルカリ性溶液中に溶解する二酸化炭素によるpHの低下を、pH緩衝液によって抑えることができ、不働態皮膜を効率良く且つ安定して形成することができる。

【0022】

請求項4に係る発明では、100～200℃での加熱乾燥によって、アルカリ性溶液で形成した不働態皮膜をより安定させることができ、耐食性を一層向上させることができる。

【0023】

請求項5に係る発明では、洗浄用アルカリ性溶液を、塩基性塩に界面活性剤を添加した溶液としたので、泡が発生し難くなり、泡による排水性等の不具合を防ぐことができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0024】

本発明を実施するための最良の形態を添付図に基づいて以下に説明する。なお、図面は符号の向きに見るものとする。

図1(a)～(c)は本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法を示す説明図であり、(a)は工程図、(b)、(c)は各工程でのセパレータ素材の断面図である。

(a)においてセパレータの製造方法を順に説明する。

(A) ステンレス鋼製薄板10をプレス型11(詳しくは、上型12及び下型13である。)でプレス成形して、複数のプレス成形素材14を造る。

【0025】

プレス成形は、最終工程で出来たセパレータを燃料電池に組込んだときに、燃料電池に燃料ガスや酸化剤ガスを供給したり、生成した水を排出するための溝等を形成するために行う。

【0026】

(B) プレス成形素材14を洗浄する。詳しくは、ステンレス鋼製薄板10をプレス成

形する際にステンレス鋼製薄板 10 とプレス型 11 との潤滑を良くするために塗布した油脂がプレス成形素材 14 に付着しているのを、洗浄液（詳細は後述する。）をプレス成形素材 14 にスプレー装置 16 でスプレーして油脂を除去（脱脂）し、次に、水（詳細は後述する。）をプレス成形素材 14 に別のスプレー装置でスプレーしてプレス成形素材 14 に付着した洗浄液を除去（水洗）する。

【0027】

(C) プレス成形素材 14 に不働態化処理用アルカリ性溶液（以下、単に「不働態化処理液」と記す。）をスプレー装置 18 でスプレーして不働態化処理し、プレス成形素材 14 に不働態皮膜を形成する。

【0028】

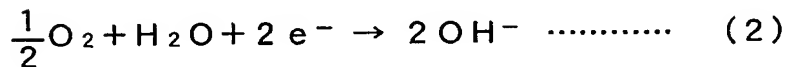
このとき、スプレーによって不働態化処理液中に酸素が溶解し、不働態化処理液中の溶存酸素量が増加するため、水酸化物形成が促進する。例えば、Fe, Cr, Ni の水酸化物及び酸化物成分を有する不働態皮膜が形成されると、セパレータを燃料電池に組込んだ場合、燃料電池の発電中に電極周囲が酸性雰囲気になっても、酸による腐食を抑制することができ、安定した発電を長期に亘って維持することができる。

水酸化物形成の促進のメカニズムは次のように推定される。

不働態化処理用アルカリ性溶液中では以下に示す反応が進行する。

【0029】

【化1】



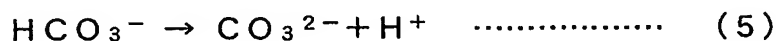
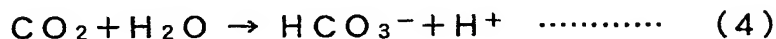
【0030】

式 (1) では金属 M がイオン化し、エアバブリングによって、式 (2) に示すように、酸素から $O H^{-}$ が生成される。この結果、不働態化処理用アルカリ性溶液中の $O H^{-}$ が増加し、式 (3) に示すように、金属イオンと増加した $O H^{-}$ とから水酸化物の生成が促進される。

また、不働態化処理用アルカリ性溶液中では、スプレーによって以下に示す反応も進行する。

【0031】

【化2】



【0032】

式 (4) に示すように、二酸化炭素と水とから H^{+} が生成され、更に式 (5) に示すように、 $H C O_3^{-}$ から H^{+} が生成され、 H^{+} が増加するために不働態化処理用アルカリ性溶液の pH は低下することになる。

しかし、不働態化処理用アルカリ性溶液に pH 緩衝液として予め、例えば $N a_2 C O_3$ ($C O_3^{2-}$ が共役塩基となる。) を添加するため、不働態化処理用アルカリ性溶液の pH の低下を抑えることができる。

【0033】

(D) 不働態皮膜を形成して出来た皮膜形成材 17 には不働態化処理液が付着している
ので、皮膜形成材 17 に水を別のスプレー装置でスプレーして皮膜形成材 17 を水洗する

。(E) 皮膜形成材 17 を加熱乾燥機 21 内で加熱乾燥させる。皮膜形成材 17 を乾燥させると、セパレータが出来る。

【0034】

(b) において、プレス成形素材 14 は、母材 22 と、この母材 22 に含まれる導電物 24 (例えば、Cr₂B)・・・(・・・は複数個を示す。以下同じ。)とからなり、導電物 24・・・を母材 22 の表面から頭出しさせたものである。

【0035】

(c) は、不働態化処理によって、皮膜形成材 17 の母材 22 の表層部に不働態皮膜 26 を形成したことを示す。導電物 24 は、不働態被膜 26 から突出した状態 (即ち、頭出しした状態) にある。

【0036】

図 2 はステンレス鋼製セパレータの製造方法を比較する説明図であり、ステンレス鋼材の脱脂から加熱乾燥までを実施例 (本実施形態) と比較例とで比較した。実施例については、図 1 の内容を詳細に説明する。上段は実施例、下段は比較例を示す。図中の STXX、STXXX はステップ番号を示す (以下同じ。)

【0037】

まず、実施例についてステップ毎に説明する。

ST01・・・スプレー脱脂を行う。即ち、前述の洗浄液としての 60℃の洗浄用アルカリ性溶液をプレス成形素材に 1 kgf/cm² の圧力でスプレーして脱脂する。このときの所要時間は 1 分、使用液量は 10 L (リットル) である (単位時間当たりのスプレー量は 10 L/分である。以下実施例において同じ。)

【0038】

洗浄用アルカリ性溶液とは、炭酸塩、リン酸塩、カルボン酸塩のアルカリ性塩 (主にナトリウム塩) に界面活性剤 (ポリオキシエチレン=アルキルエーテル C12-15) を加えた洗剤 (商品名: パクナ・スプレー 50-N、メーカー名: ユケン工業 (株)) である。

【0039】

ST02・・・スプレー水洗 W1 を行う。即ち、プレス成形素材に付着した洗浄用アルカリ性溶液を除去するために、洗浄水としての水道水又は工業用水をプレス成形素材にスプレーして水洗する。このときの所要時間は 0.25 分、使用液量は 2.5 L である。

【0040】

ST03・・・スプレー水洗 W2 を行う。即ち、プレス成形素材に付着した水道水又は工業用水を除去するために、イオン交換水をプレス成形素材にスプレーして水洗する。このときの所要時間は 0.25 分、使用液量は 2.5 L である。上記したスプレー水洗 W1 とスプレー水洗 W2 とを設けたのは、イオン交換水よりも安価な水道水又は工業用水を使用することでコストを低減し、次に、イオン交換水を使用することで、水道水又は工業用水に含まれる塩素成分を除去するためである。塩素成分は不働態化反応を妨げる。

【0041】

ST04・・・スプレー不働態化処理を行う。即ち、不働態化処理液として NaOH 水溶液 (pH 9~12、40~60℃) をプレス成形素材にスプレーして不働態化処理を行う。このときの所要時間は 10 分である。

【0042】

ST05・・・スプレー水洗 W3 を行う。即ち、皮膜形成材に付着した不働態化処理液を除去するために、イオン交換水を皮膜形成材にスプレーして水洗する。このときの所要時間は 0.5 分、使用液量は 5 L である。

【0043】

ST06...100~200℃で皮膜形成材の加熱乾燥を行う。このときの所要時間は10分である。

以上より、実施例の脱脂から加熱乾燥までの所要時間の合計は22分となる。また、スプレー脱脂及びスプレー水洗W1~スプレー水洗W3での使用液量の合計は20Lとなる。

【0044】

次に、比較例についてステップ毎に説明する。

ST101...超音波脱脂を行う。即ち、洗浄用アルカリ性溶液によりプレス成形素材の超音波脱脂を行う。このときの所要時間は5分、使用液量は150Lである（浸漬法はオーバーフロー式であり、単位時間当たりのオーバーフロー量は30L/分である。以下比較例において同じ。）。

ST102...浸漬脱脂を行う。即ち、プレス成形素材を洗浄用アルカリ性溶液に浸漬し、脱脂する。このときの所要時間は5分、使用液量は150Lである。

【0045】

ST103...浸漬水洗W1を行う。即ち、プレス成形素材を水道水に浸漬し、水洗する。このときの所要時間は1分、使用液量は30Lである。

ST104...浸漬水洗W2を行う。即ち、プレス成形素材をイオン交換水に浸漬し、水洗する。このときの所要時間は1分、使用液量は30Lである。

【0046】

ST105...浸漬不動態化処理を行う。即ち、プレス成形素材を不動態化処理用アルカリ性溶液に浸漬し、不動態化処理を実施する。このときの所要時間は10分である。

ST106...浸漬水洗W3を行う。即ち、皮膜形成材をイオン交換水に浸漬し、水洗する。このときの所要時間は6分、使用液量は180Lである。

ST107...皮膜形成材を加熱乾燥する。このときの所要時間は10分である。

【0047】

以上より、比較例の脱脂から加熱乾燥までの所要時間の合計は38分となる。また、脱脂及び浸漬水洗W1~浸漬水洗W3での使用液量の合計は540Lとなる。

【0048】

以上の実施例と比較例とから、実施例のスプレー法は、比較例の浸漬法に比べて所要時間で16分短縮し、使用液量で520L低減することができた。

【0049】

図3(a), (b)は本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレー洗浄の効果を確認する第1実験例を示す説明図であり、洗浄用アルカリ性溶液を使用して、スプレー洗浄と超音波洗浄・浸漬洗浄とでの洗浄力（脱脂力）の比較を行った。（a）は試料作成及び効果確認のフロー図、（b）は比較のためのグラフである。

（a）において、試料作成及び効果確認の流れをステップ毎に説明する。

ST11...エッチング処理を行い、ステンレス鋼材製の試験片の導電物頭出しを行う。

【0050】

ST12...試験片に油脂（グリース、工作油及び防錆剤を混合したもの）を塗布する。上記したグリースとは、商品名：コスモグリースマックスNo. 1、組成：潤滑油基油 約91wt%、増稠剤（リチウム石鹸） 約7wt%、潤滑油添加剤 約2wt%、メーカー名：コスモ石油ルブリカンツ（株）である。

工作油とは、商品名：No. 630 プレス工作油、組成：石油系炭化水素（鉱物油） 約50wt%、塩素系極圧添加剤 10~50wt%、硫黄系極圧添加剤 1~10wt%、メーカー名：日本工作油（株）である。

防錆剤とは、商品名：ノンラスターP30F、組成：防錆添加剤、造膜剤、溶剤、メーカー名：ユシロ化学工業（株）である。

【0051】

ST13...試験片を前述の洗浄用アルカリ性溶液で洗浄する。

このとき、（1）スプレー洗浄する場合は、溶液温度60℃、洗浄時間1分、スプレー

圧力 1 kgf/cm^2 であり、(2) 超音波洗浄及び浸漬洗浄を行う場合は、超音波洗浄での溶液温度 40°C 、洗浄時間 5 分、浸漬洗浄での溶液温度 40°C 、洗浄時間 5 分である。

【0052】

ST14…試験片を水洗する。

ST15…試験片を乾燥させる。

ST16…洗浄の効果を確認するために、試験片を n-ヘキサン溶剤に浸漬し、試験片に残留した油脂分を n-ヘキサン溶剤中に溶解させて抽出する。

ST17…n-ヘキサン溶剤を赤外分光装置で分光分析し、油分量を測定する。

【0053】

(b) は (a) で得られた各試験片の油分量を示すグラフであり、縦軸は試験片に残留した油分量 (単位は mg/cm^2)、横軸は各洗浄方法を示す。

未洗浄の場合は、油分量は 3.5 mg/cm^2 、超音波洗浄・浸漬洗浄の場合は 0.55 mg/cm^2 、スプレー洗浄の場合は 0.15 mg/cm^2 となり、スプレー洗浄は、超音波洗浄・浸漬洗浄に対して油分量が 73% 少ない。即ち、スプレー洗浄の方が洗浄力 (脱脂力) が高い。

【0054】

図 4 (a), (b) は本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレー洗浄の効果を確認する第 2 実験例を示す説明図であり、洗浄用アルカリ性溶液を使用して、スプレー洗浄と浸漬洗浄とでの洗浄時間による洗浄力 (脱脂力) の比較を行った。

(a) は試料作成及び効果確認のフロー図、(b) は比較のためのグラフである。

(a) において、試料作成及び効果確認の流れをステップ毎に説明する。

ST21…エッチング処理にてステンレス鋼材製の試験片の導電物頭出しを行う。

ST22…試験片に油脂 (図 3 で使用したものと同一のものである。) を塗布する。

【0055】

ST23…試験片を前述の洗浄用アルカリ性溶液で洗浄 (脱脂) する。

このとき、(1) スプレー洗浄する場合は、溶液温度 40°C 、スプレー圧力 1 kgf/cm^2 である。(2) 浸漬洗浄する場合は、溶液温度 40°C である。

【0056】

ST24…試験片を水洗する。

ST25…試験片を乾燥させる。

ST26…洗浄の効果を確認するために、試験片を n-ヘキサン溶剤に浸漬し、試験片に残留した油脂分を n-ヘキサン溶剤中に溶解させて抽出する。

【0057】

ST27…n-ヘキサン溶剤を赤外分光装置で分光分析し、試験片に残留した油分量を測定する。

実験は、洗浄時間毎に、上記工程によってスプレー洗浄した試験片及び浸漬洗浄した試験片をそれぞれ作成し、それぞれの試験片の油分量を測定した。

洗浄時間は、0 (ゼロ) 分 (未洗浄)、1 分、3 分、5 分、10 分、15 分及び 20 分とした。

【0058】

(b) は (a) で得られた各試験片の油分量と洗浄時間との関係を示すグラフであり、縦軸は油分量 (単位は mg/cm^2)、横軸は洗浄時間 (単位は min) を表す。

スプレー洗浄では、洗浄前の油分量 3.5 mg/cm^2 から洗浄時間 1 分で 0.14 mg/cm^2 まで急激に減少し、その後はほぼ横ばいとなった。

【0059】

これに対して、浸漬洗浄では、洗浄前の油分量 3.5 mg/cm^2 が洗浄時間 1 分で 1.0 mg/cm^2 まで少なくなり、その後は時間と共に油分量が低下し、20 後にスプレー洗浄とほぼ同等になった (スプレー洗浄 0.08 mg/cm^2 、浸漬洗浄 0.13 mg/cm^2)。

【0060】

このように、スプレー洗浄では、浸漬洗浄に比べて洗浄時間（脱脂時間）を大幅に短縮することができる。

【0061】

図5 (a), (b) は本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレー洗浄の効果を確認する第3実験例を示す説明図であり、スプレー水洗と浸漬水洗とでの水洗時間による洗浄力の比較を行った。(a) は試料作成及び効果確認のフロー図、(b) は比較のためのグラフである。

【0062】

(a) において、試料作成及び効果確認の流れをステップ毎に説明する。

ST 3 1…ホウ素を添加したステンレス鋼材製の試験片を準備する。

ST 3 2…試験片を洗浄用アルカリ性溶液に3分間浸漬する。

【0063】

ST 3 3…スプレー水洗する場合は、試験片への水のスプレー量を10 L/分とする。

ST 3 4…浸漬水洗する場合は、オーバーフロー式での水量を10 L/分とする。

ST 3 5…試験片をイオン交換水に60分間浸漬する。

ST 3 6…試験片を浸漬しておいたイオン交換水のpHを測定する。

【0064】

実験は、水洗時間毎に、上記工程によってスプレー水洗した試験片及び浸漬水洗した試験片をそれぞれ作成し、それぞれの試験片をイオン交換水に浸漬した後、pHを測定した。

水洗時間は、15分、30分、45分（スプレー水洗のみ）、60分及び120分とした。

【0065】

(b) は、イオン交換水のpHと水洗時間との関係を示すグラフであり、縦軸はpH、横軸は水洗時間（単位はsec）を表す。

スプレー水洗では、水洗時間15分でpHが7.17まで低下し、水洗時間が増してもpHはほぼ横ばいとなる。

【0066】

これに対して浸漬水洗では、水洗時間15分でpHが7.70までしか低下せず、その後、水洗時間が増すにつれて徐々に低下したが、水洗時間が120分でもスプレー水洗でのpHまでは下がらなかった。

このように、スプレー水洗では、浸漬水洗に比べて短時間でpHを低下させることができる、即ち、短時間の水洗が可能になる。

【0067】

図6は本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレーによる不働態化処理の効果を確認する第4実験例を示すグラフ（腐食実験）であり、スプレーによる不働態化処理と浸漬による不働態化処理とでそれぞれ処理時間毎に不働態皮膜を形成した試験片（最終的に加熱乾燥まで行ったものである。）の腐食電流密度を測定し、比較したものである。試験片は処理条件毎に3個ずつ用意して腐食電流密度を測定し、3個の平均をグラフにプロットした。腐食電流密度が小さければ、腐食し難いことを意味する。グラフの縦軸は腐食電流密度（単位は $\mu A/cm^2$ ）、横軸は不働態化処理の処理時間（単位はmin）を表す。また、破線は腐食電流密度の要件値（ $5.1 \mu A/cm^2$ ）である。

【0068】

以下に腐食実験条件を示す。

・腐食実験条件

試験溶液 : 硫酸水溶液 (pH 3、濃度 0.005%、温度 90℃)

試験片電位 : 638.8 mV 一定 (飽和甘こう電極 (SCE) を基準に設定)

以下、「638.8 mV vs. SCE」と記載する。

試験方法 : 上記試験片電位を30分間保持後に腐食電流密度を測定

【0069】

不働態化処理条件を以下に示す。

・スプレー法

処理液 : NaOH水溶液 (pH 10.7~11、温度 60℃)
スプレー量 : 100 L/分
スプレー時間 : 10分
加熱乾燥 : 110℃、10分

【0070】

・浸漬法

処理液 : NaOH水溶液 (pH 10.8、温度 50℃)
浸漬時間 : 10分
加熱乾燥 : 110℃、10分

【0071】

腐食電流密度は、各処理時間共に、スプレー法と浸漬法とで同等な値となった。即ち、スプレー法と浸漬法とでは、共に3分以上で要件値以下となり、スプレー法と浸漬法とでは処理時間の差は無かった。

【0072】

図7は本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレーによる不働態化処理の効果を確認する第5実験例を示すグラフであり、スプレー法にて製造したセパレータと浸漬法にて製造したセパレータによる貫通抵抗(接触抵抗)を測定し、比較したものである。グラフの縦軸は貫通抵抗(単位は $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$)、横軸は貫通抵抗を測定するときの2つの条件を表す。

【0073】

貫通抵抗を測定するときの条件とは、一つは、セパレータ2枚を接触させてセパレータ間の貫通抵抗を測定したもの、他の一つは、2枚のセパレータ間に電極となるカーボンペーパーを1枚挟んでセパレータ間(ここでは、セパレータ・電極間と記載した。)の貫通抵抗を測定したものである。貫通抵抗測定時のセパレータ間の面圧については、面圧を次第に大きくしたときに貫通抵抗が安定したときのものである。

【0074】

不働態化処理条件を以下に示す。

・スプレー法

処理液 : NaOH水溶液 (pH 10.7~11、温度 60℃)
スプレー量 : 100 L/分
スプレー時間 : 10分
加熱乾燥 : 110℃、10分

【0075】

・浸漬法

処理液 : NaOH水溶液 (pH 10.8、温度 50℃)
浸漬時間 : 10分
加熱乾燥 : 110℃、10分

【0076】

セパレータ間の貫通抵抗及びセパレータ・電極間の貫通抵抗は、それぞれスプレー法と浸漬法とで同等となり、セパレータ・電極間の貫通抵抗は、目標値 $20.5 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ を下回った。

【0077】

以上の図1及び図2で説明したように、本発明は第1に、ステンレス鋼製薄板10に潤滑剤としての油脂を塗布してガス流路及び冷却水流路をプレス成形する工程と、洗浄用アルカリ性溶液をプレス成形した後のプレス成形素材14にスプレーすることによりプレス成形素材14に付着した油脂を除去する工程と、水道水又は工業用水をプレス成形素材14にスプレーすることによりプレス成形素材14に付着した洗浄用アルカリ性溶液を除去

する工程と、イオン交換水をプレス成形素材 14 にスプレーすることによりプレス成形素材 14 に残留する水道水又は工業用水を除去する工程と、プレス成形素材 14 を不働態化処理するために不働態化処理用アルカリ性溶液をプレス成形素材 14 にスプレーする工程と、イオン交換水を不働態皮膜形成材 17 にスプレーすることにより不働態皮膜形成材 17 に付着した不働態化処理用アルカリ性溶液を除去する工程と、不働態皮膜形成材 17 を加熱乾燥する工程と、から構成したことを特徴とする。

【0078】

洗浄用アルカリ性溶液をプレス成形素材 14 にスプレーすることによりプレス成形素材 14 に付着した油脂を除去する工程を設けたことで、スプレーによって油脂除去効果を高めることができ、従来の浸漬による除去工程に比べて、除去時間を短縮することができる。とともに除去に要する洗浄用アルカリ性溶液の量を減らすことができる。

【0079】

また、洗浄水（水道水又は工業用水）及びイオン交換水による洗浄と、不働態化処理とをスプレーで行うことにより、これらの洗浄及び不働態化処理に要する時間を従来の浸漬法に比べてより一層短縮することができ、また、洗浄に要する水道水又は工業用水、イオン交換水の量を減らすことができる。

【0080】

更に、洗浄用溶液と不働態化処理用溶液とを同じアルカリ性としたので、それぞれの廃液を同時に処理することができ、コストを抑えることができる。

また更に、従来のようなブラッシング等に必要な駆動源が不要であるから、設備の簡素化を図ることができ、設備に要するコストを低減することができる。

【0081】

また更に、不働態化処理用アルカリ性溶液のスプレーによって、アルカリ性溶液中の溶存酸素量が増加することで OH^- が増加し、増加した OH^- と金属イオンとが結合するために水酸化物の形成を促進させることができる。従って、プレス成形素材 14 に水酸化物を有する不働態皮膜を形成することができ、セパレータとして燃料電池内に組込んだ場合に発電中の酸性雰囲気でのセパレータの腐食を抑制することができる。

【0082】

本発明は第 2 に、不働態化処理用アルカリ性溶液を、 $\text{pH} 9 \sim 12$ で且つ $40 \sim 60^\circ\text{C}$ とした溶液としたことを特徴とする。

プレス成形素材 14 を不働態化処理用アルカリ性溶液により不働態化処理することで、プレス成形素材 14 からの金属イオンの溶出がなく、酸により不働態化処理するのに比べて、廃液処理に要するコストを低減することができ、また、単一の溶液でのスプレーのみで不働態化処理を行うことができ、処理工程数が少なく、より一層コスト低減を図ることができる。

【0083】

本発明は第 3 に、不働態化処理用アルカリ性溶液を、 pH 緩衝液を添加した溶液としたことを特徴とする。

不働態化処理用アルカリ性溶液のスプレーによって、不働態化処理用アルカリ性溶液中に溶解する二酸化炭素による pH の低下を、 pH 緩衝液によって抑えることができ、不働態皮膜を効率良く且つ安定して形成することができる。

【0084】

本発明は第 4 に、加熱乾燥処理を、 $100 \sim 200^\circ\text{C}$ にて行うことを特徴とする。

$100 \sim 200^\circ\text{C}$ での加熱乾燥によって、アルカリ性溶液で形成した不働態皮膜をより安定させることができ、耐食性を一層向上させることができる。

【0085】

本発明は第 5 に、洗浄用アルカリ性溶液を、塩基性塩に界面活性剤を添加した溶液としたことを特徴とする。

洗浄用アルカリ性溶液を、塩基性塩に界面活性剤を添加した溶液としたことで、泡が発生し難くなり、泡による排水性等の不具合を防ぐことができる。

【0086】

尚、本発明では、不働態化处理用アルカリ性溶液をシャワーすることで水酸化物形成を促進させたが、不働態化处理用アルカリ性溶液のシャワーに加え、不働態化处理用アルカリ性溶液を蓄えておくタンク内にエアを吹き込むこと（即ち、エアバルブリングである。）で水酸化物形成を更に促進させてもよい。

【産業上の利用可能性】

【0087】

本発明のステンレス鋼製セパレータの製造方法は、燃料電池に好適である。

【図面の簡単な説明】

【0088】

【図1】本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法を示す説明図

【図2】ステンレス鋼製セパレータの製造方法を比較する説明図

【図3】本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレー洗浄の効果を確認する第1実験例を示す説明図

【図4】本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレー洗浄の効果を確認する第2実験例を示す説明図

【図5】本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレー洗浄の効果を確認する第3実験例を示す説明図

【図6】本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレーによる不働態化処理の効果を確認する第4実験例を示すグラフ

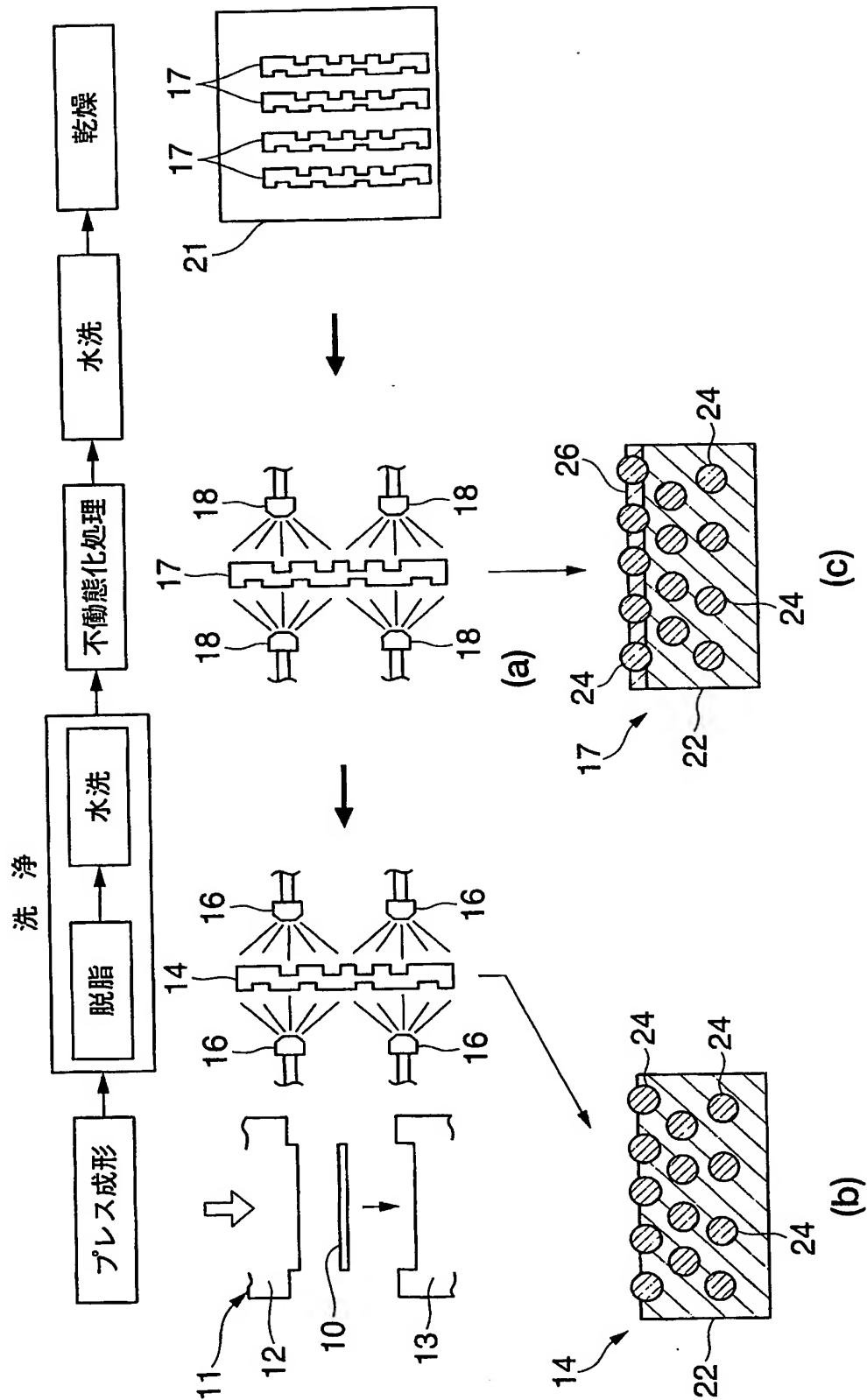
【図7】本発明に係るステンレス鋼製セパレータの製造方法におけるスプレーによる不働態化処理の効果を確認する第5実験例を示すグラフ

【符号の説明】

【0089】

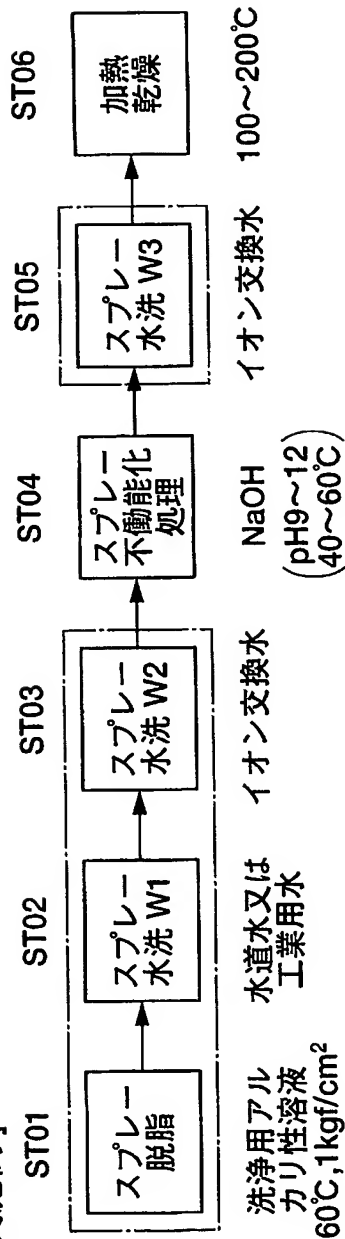
10…ステンレス鋼製薄板、14…プレス成形素材、16, 18…スプレー装置、17…皮膜形成材、21…加熱乾燥機。

【書類名】 図面
【図 1】



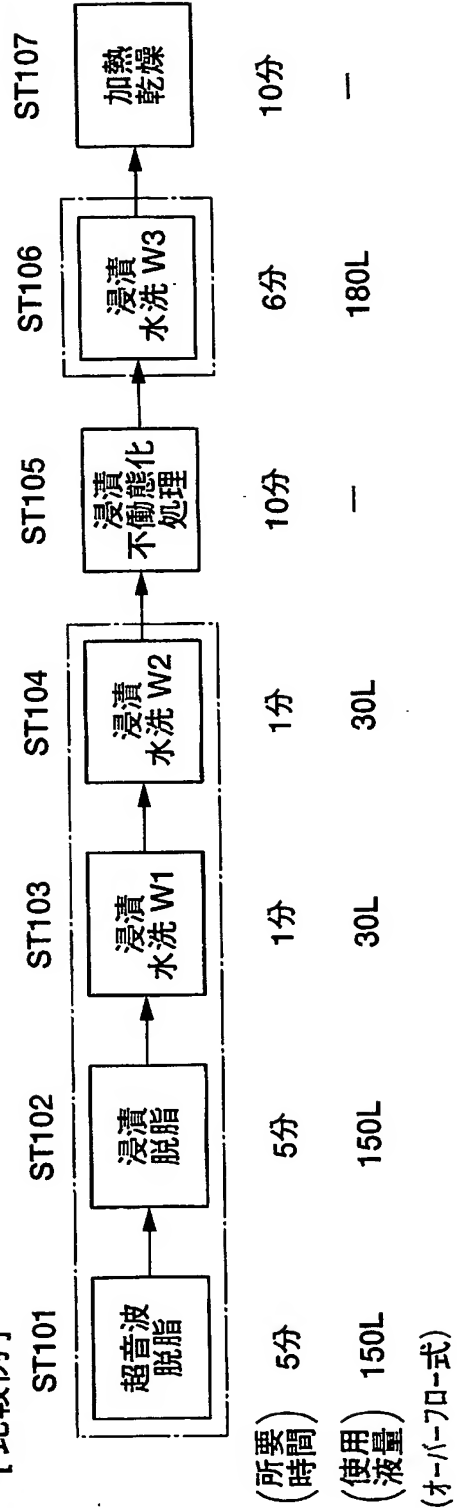
【図 2】

【実施例】



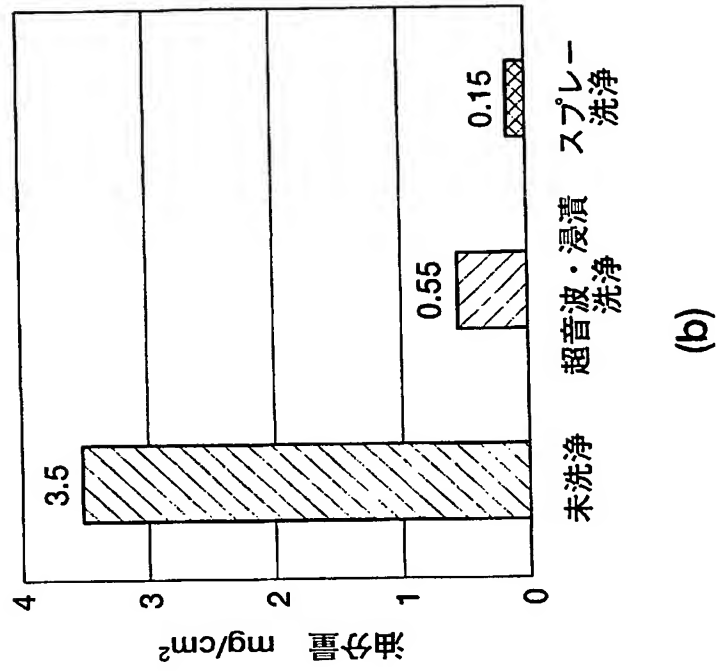
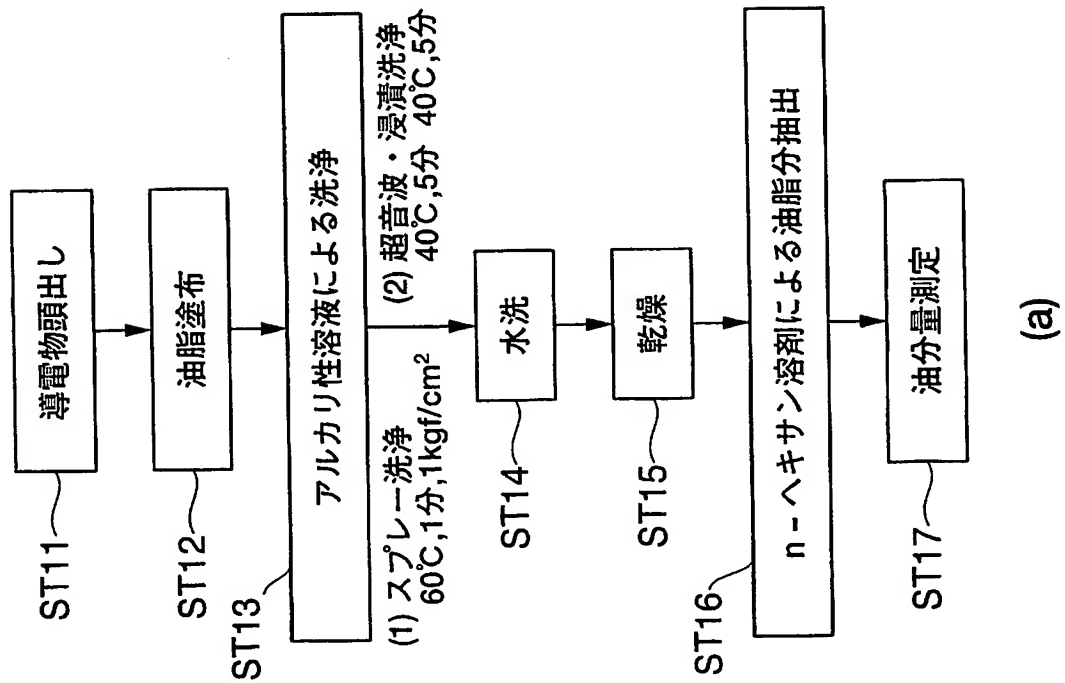
(所要時間)	1分	0.25分	0.25分	10分	0.5分	10分	計 22分
(使用液量)	10L	2.5L	2.5L	—	5L	—	計 20L

【比較例】

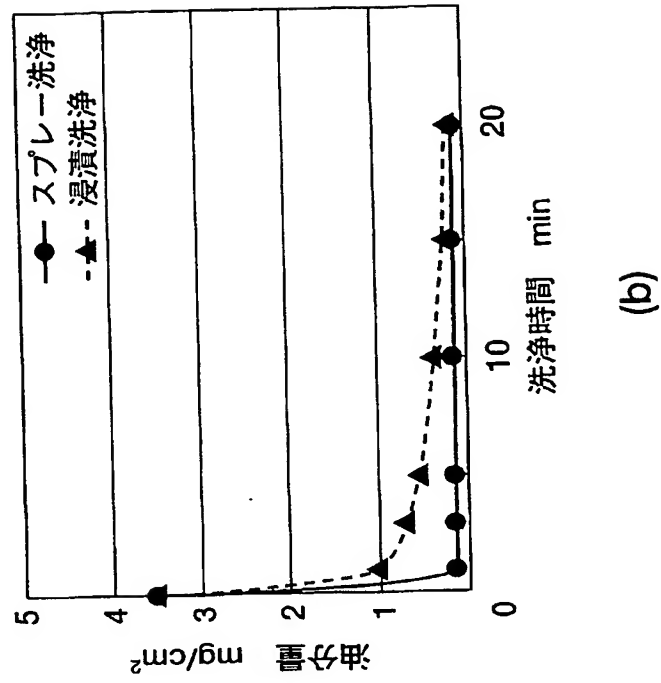
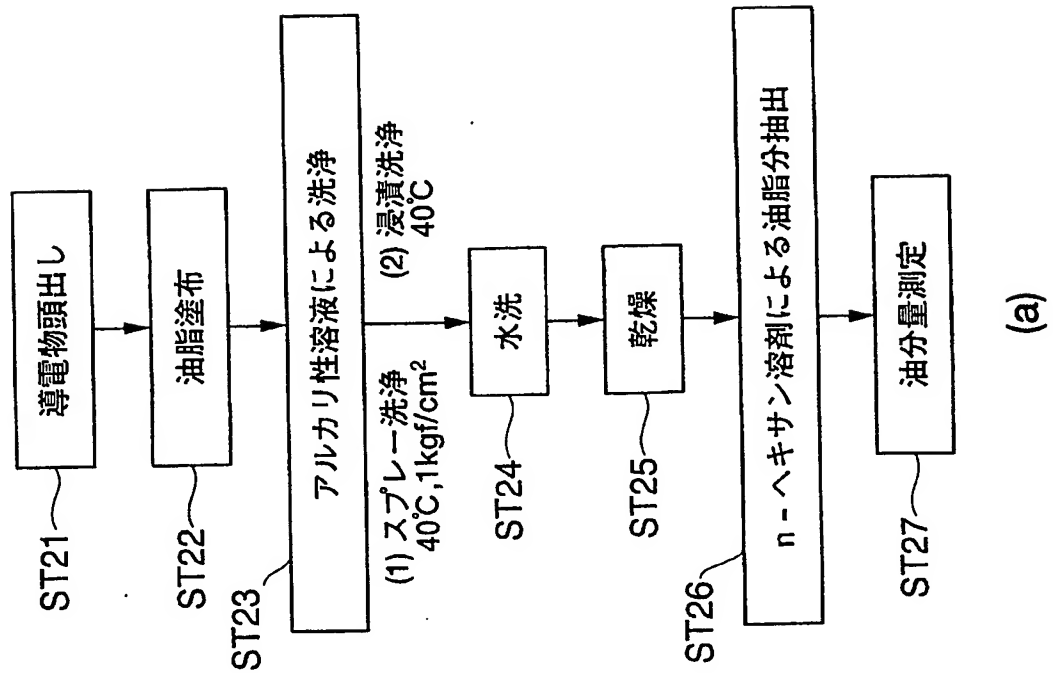


(所要時間)	5分	5分	1分	1分	10分	6分	10分	計 38分
(使用液量)	150L	150L	30L	30L	—	180L	—	計 540L

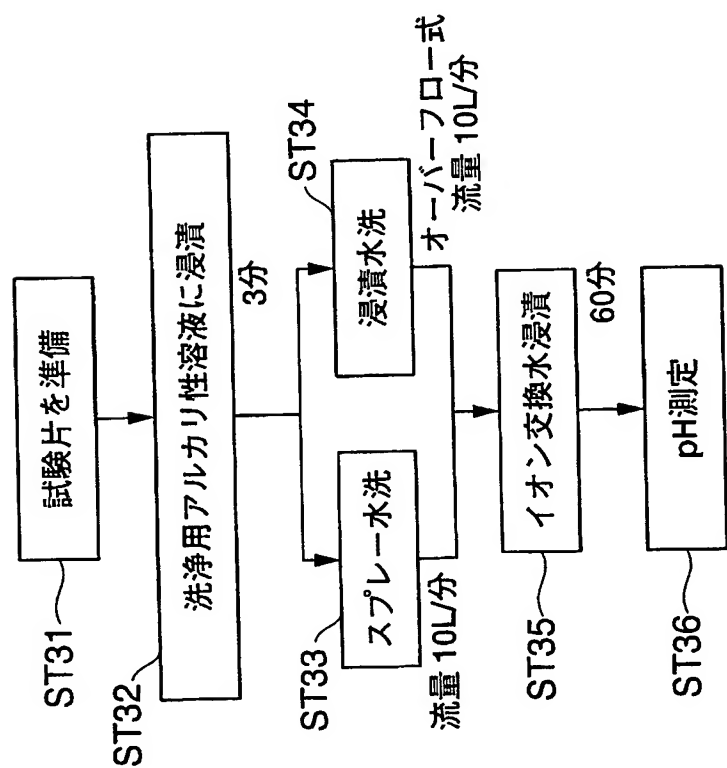
【図 3】



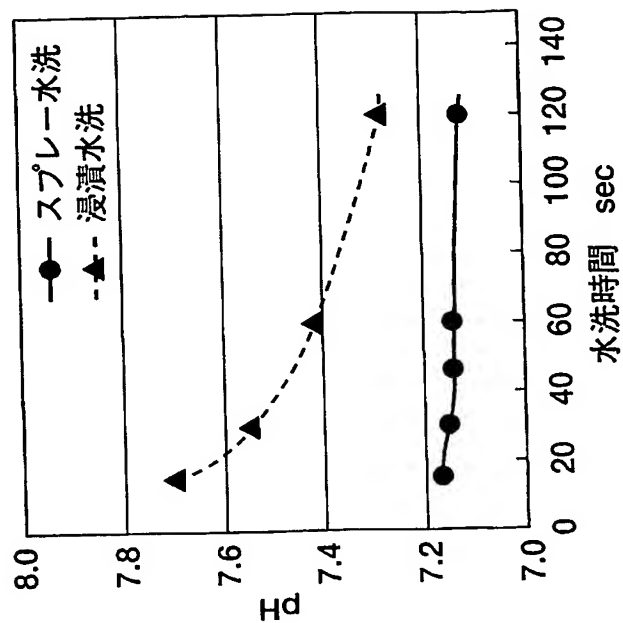
【図 4】



【図 5】

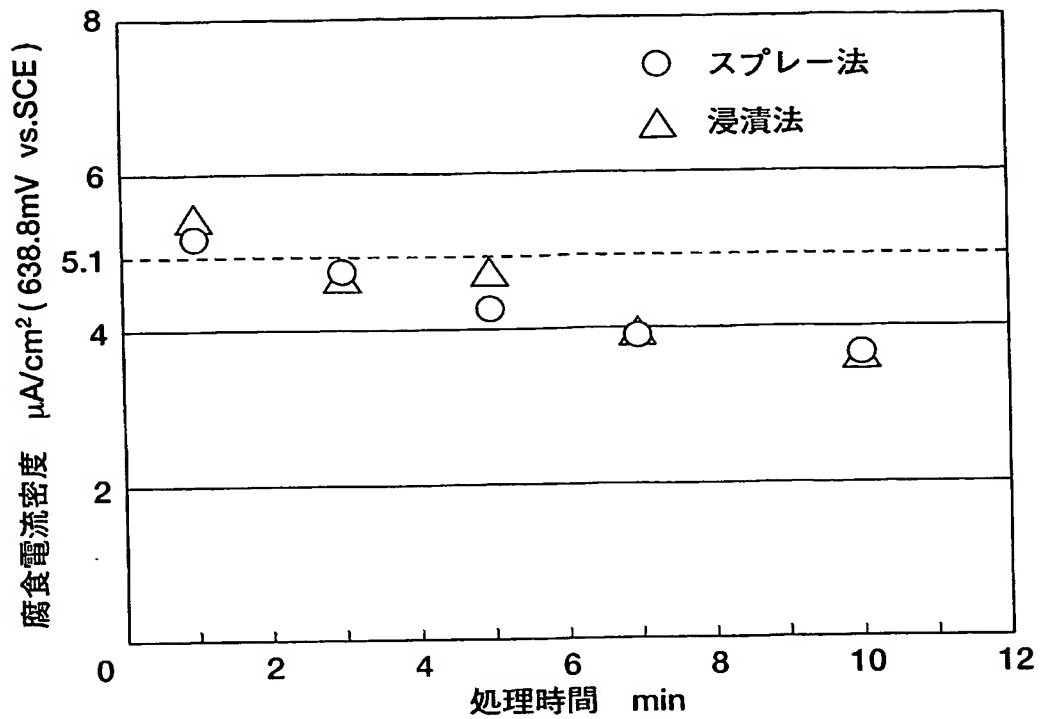


(a)

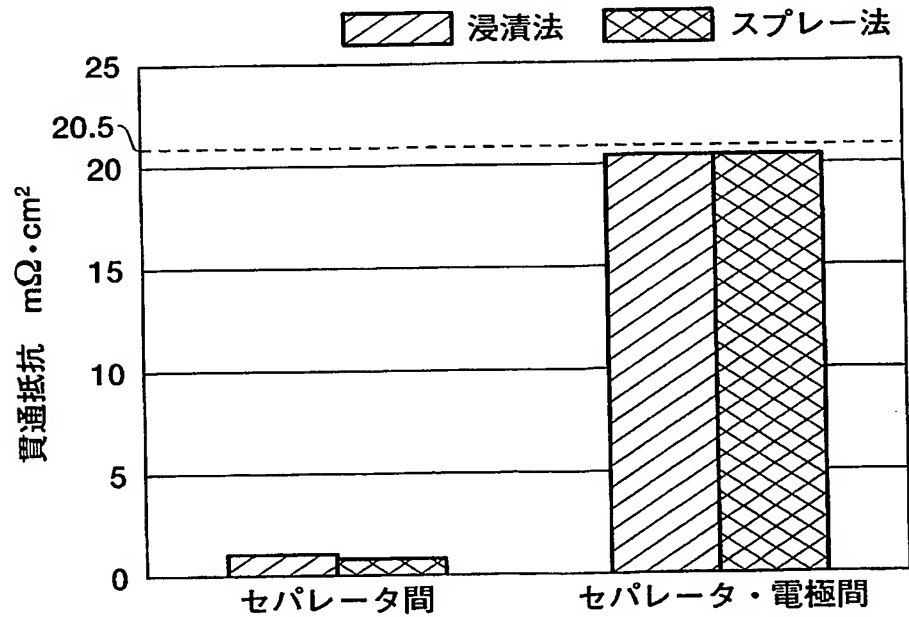


(b)

【図 6】



【図 7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 セパレータの材料となるステンレス鋼製薄板の洗浄時間を短縮するとともに洗浄液使用量を低減し、廃液の処理コストを抑え、設備の簡素化を図ることを可能にする。

【解決手段】 ステンレス鋼製薄板 10 に油脂を塗布してプレス成形する工程と、洗浄用アルカリ性溶液をプレス成形素材 14 にスプレーすることにより油脂を除去する工程と、水道水又は工業用水をプレス成形素材 14 にスプレーすることにより洗浄用アルカリ性溶液を除去する工程と、イオン交換水をプレス成形素材 14 にスプレーすることにより水道水又は工業用水を除去する工程と、プレス成形素材 14 を不働態化处理するために不働態化处理用アルカリ性溶液をプレス成形素材 14 にスプレーする工程と、イオン交換水を不働態皮膜形成材 17 にスプレーすることにより不働態化处理用アルカリ性溶液を除去する工程と、不働態皮膜形成材 17 を加熱乾燥する工程と、から構成した。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 2 9 5 2 7 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 5 3 2 6]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目1番1号

氏 名

本田技研工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.